

## 明細書

## 粉体処理方法、粉体処理装置、及び、多孔質造粒物の製造方法

## 5 技術分野

本発明は、被処理粉体に機械的な力を付与して活性化させる機械的処理として、特に、被処理粉体に圧縮力とせん断力を付与して摩碎する摩碎処理を行う粉体処理方法に関する。更に、本発明は、被処理粉体が堆積する堆積面と、前記堆積面に対向配置され凸状に湾曲する処理面とを備え、前記堆積面と前記処理面とを前記堆積面に沿って相対移動させる移動手段を備えた粉体処理装置に関する。更に、本発明は、被処理粉体が凝集してなり複数の気孔を有する多孔質造粒物の製造方法に関する。

## 背景技術

15 従来、上記のような粉体処理装置として、被処理粉体が内部に供給される有底円筒状の容器部材と、容器部材の内面である堆積面に対向配置され先端部に凸状に湾曲する処理面を有する処理部材と、容器部材及び処理部材を相対回転させる回転駆動手段（移動手段の一例）とを備えたものが知られている（例えば、特開昭63-42728号公報（以下、先行技術文献1と呼ぶ。）、特開平6-134274号公報（以下、先行技術文献2と呼ぶ。）、特開平5-317679号公報（以下、先行技術文献3と呼ぶ。）を参照。）。そして、このような粉体処理装置は、回転駆動手段を働かせて、容器部材内面の堆積面に対して処理部材先端の処理面を堆積面に沿って相対移動させることで、堆積面と処理面との間隙で被処理粉体に圧縮力とせん断力を付与して、例えば被処理粉体に摩碎処理を施すように構成されている。

また、上記先行技術文献3には、ステンレススチール等の金属粉体に、窒化珪素又はジルコニア等のセラミックスの微粉体を加えた混合粉体に対して、上述した粉体処理装置により、強力な圧縮力とせん断力を付与して摩碎混合することで、金属粒子を核としてこの核の表面に金属粉体とセラミックスの微粉体との混

合物による被覆層を形成させる状態で、金属粉体とセラミックス微粒子とを複合化する技術について開示されている。

また、被処理粉体に別物質を複合化させた複合粉体としては、例えば、酸化チタン粉体に窒素元素を複合化させた窒素含有酸化チタン粉体がある。この窒素含有酸化チタン粉体は光触媒として機能することが知られている。

このように被処理粉体に別物質を複合化させて複合粉体を製造する粉体処理方法としては、酸化チタン粉体と窒素化合物である尿素とを攪拌混合することで、酸化チタン粉体に尿素を吸着させた後に加熱する方法（例えば、特開2002-154823号公報（以下、先行技術文献4と呼ぶ。）を参照。）や、酸化チタン粉体をターゲットとして窒素を含むガス中でスパッタリングする方法（例えば、特開2000-140636号公報（以下、先行技術文献5と呼ぶ。）を参照。）や、酸化チタン粉体に窒素プラズマ処理を施す方法（例えば、先行技術文献4、及び、特開平11-43759号公報（以下、先行技術文献6と呼ぶ。）を参照。）等が知られている。

従来、上述した先行技術文献1～3に記載された粉体処理装置により酸化チタン粉体等の被処理粉体に窒素等の別物質を複合化させて複合粉体を製造する粉体処理方法においては、被処理粉体を磨碎して表面を比較的活性が高い状態とすることができるものの、その方法だけでは、その被処理粉体に別物質を複合化することは困難であった。

また、上述した先行技術文献4に記載された粉体処理方法においては、尿素中の窒素を酸化チタン粉体に複合化させるために、酸化チタン粉体全体を、例えば30分間500℃程度に加熱しておく必要があり、加熱炉等が必要となり処理装置が煩雑となるうえに、膨大な処理時間を必要とする。

また、上述した先行技術文献4～6に記載された粉体処理方法においては、酸化チタン粉体等の被処理粉体の表面に吸着有機物が存在していると、別物質の金属酸化物粉体への複合化が阻害されて、歩留まりの悪化を招くことになる。更に、スパッタリング処理等だけでは、均質且つ効率良く複合粉体を製造することができなかった。

また、複数の気孔を有し、その気孔により伝熱を抑制して断熱材として用いた

り、音波の伝達を抑制して吸音材として用いたりすることができる多孔質造粒物がある。このような多孔質造粒物において、多孔質造粒物の気孔を極めて微細なものとすれば、空気分子の運動が規制され、更には、その気孔への空気分子の進入が規制されて、超低熱伝導率や超高吸音性を達成できることが知られている。

5 また、このような微細気孔を有する多孔質造粒物は各種成分の分離膜としての利用することも期待できる。

このような多孔質造粒物は、微細な被処理粉体に圧縮力を付与することで凝集させて製造することができる。

しかし、上述した多孔質造粒物を製造する方法において、被処理粉体に圧縮力  
10 を付与するだけでは、被処理粉体を良好に凝集させることができない場合がある。

また、上述した先行技術文献 1～3 に記載された粉体処理装置により、堆積面とそれに対向する処理面とを相対移動させ、それらの間隙で被処理粉体に圧縮力とせん断力とを付与して摩碎処理すれば、被処理粉体の表面に新生面等の活性面を形成することができるので、被処理粉体が凝集されやすくなると考えられる。

15 しかし、実際には摩碎された被処理粉体をある程度凝集させることはできるものの多孔質造粒物として利用可能なほど凝集させることは困難であった。

#### 発明の開示

本発明は、上述した課題に鑑みてなされたものであり、その目的は、被処理粉  
20 体に別物質を複合化させた複合粉体を効率良く製造することができる粉体処理方法及び粉体処理装置を実現する点にある。

更に、本発明の目的は、被処理粉体が凝集してなり複数の気孔を有する多孔質造粒物を効率良く製造可能な粉体処理装置及び多孔質造粒物の製造方法を実現する点にある。

25 上述した目的を達成するための本発明に係る粉体処理方法は、被処理粉体に機械的な力を付与して活性化させる機械的処理を行う粉体処理方法であって、その特徴構成は、前記機械的処理を行いながら、前記被処理粉体に励起エネルギーを付与する励起処理を行う点にある。

尚、本願において、励起エネルギーとは、被処理粉体を特定の励起状態に移行す

るために必要なエネルギーであり、これらは放電プラズマによる電気的処理や光やマイクロ波等の電磁波、インダクションヒーティング等の他の手段により与えられるものである。

即ち、上記粉体処理方法の特徴構成によれば、上記機械的処理を行うことで、  
5 被処理粉体に、圧縮力、せん断力、衝撃力等の機械的な力を付与して、被処理粉  
体の表面に例えば結晶の歪や新生面を形成することにより、その被処理粉体表面  
を別物質の複合化を良好に受け入れることができる活性面に維持することができる。  
る。

よって、この粉体処理方法により、上述のように機械的処理を行いながら、上  
10 記励起処理を行うことで、被処理粉体を一層活性化した状態に励起することができ  
き、例えば、短時間で、その被処理粉体表面を、有機付着物等が殆ど付着せずに  
別物質が複合化しやすい状態とすることができます。

従って、機械的処理と励起処理とを同時に行うという簡単な構成で、被処理粉  
体を、別物質が極めて複合化しやすい状態とすることができます。

15 尚、本願において「別物質」とは、被処理粉体とは別の物質を示す。また、別  
物質は、单元素、化合物、複合体等のいかなる形態のものでも構わない。

本発明に係る粉体処理方法の更なる特徴構成は、前記機械的処理として、前記  
被処理粉体に圧縮力とせん断力を付与して摩碎する摩碎処理を行う点にある。

即ち、上記粉体処理方法の特徴構成によれば、上記摩碎処理を行うことで、被  
20 処理粉体の粒径を均等なものとしながら、被処理粉体が凝集することを抑制して、  
被処理粉体が別物質と接触する機会を高めることができる。更に、上記摩碎処理  
を行うことで、被処理粉体の表面を、不純物の付着が極めて少なくて別物質の複  
合化を良好に受け入れができる新生面に維持することができる。よって、  
この粉体処理方法により、上述のように摩碎処理を行いながら、上記励起処理を  
25 行うことで、被処理粉体を一層活性化した状態に励起することができ、例えば、  
短時間で、被処理粉体表面を、有機付着物等が殆ど付着せずに別物質が複合化し  
やすい状態とすることができます。

従って、摩碎処理と励起処理とを同時に行うという簡単な構成で、被処理粉体  
に別物質が極めて複合化しやすい状態とすることができます。

本発明に係る粉体処理方法の更なる特徴構成は、前記励起エネルギーとして放電プラズマを用いる点にある。

上記励起処理としては、励起エネルギーとして電子を照射する電子励起処理、励起エネルギーとして紫外光やマイクロ波等の電磁波を照射する電磁波励起処理等がある。しかし、上記粉体処理方法の特徴構成によれば、励起処理において、励起エネルギーとしてグロー放電やアーク放電による放電プラズマを照射することで、簡単且つ効率良く被処理粉体を励起させることができ、例えば、被処理粉体に対して別物質をスパッタリングして複合化させることができる。

本発明に係る粉体処理方法の更なる特徴構成は、前記機械的処理及び前記励起処理において、前記被処理粉体に別物質を接触させることで、前記被処理粉体に前記別物質を複合化して複合粉体を製造する点にある。

即ち、上記粉体処理方法の特徴構成によれば、摩碎処理等の機械的処理と励起処理とを同時にいながら、別物質を被処理粉体に接触させることで、摩碎及び励起された被処理粉体に別物質を極めて良好に複合化させて、効率良く、複合粉体を製造することができる。

更に、本発明に係る粉体処理方法により複合粉体を製造する場合には、これまで説明してきたように、効率良く、前記被処理粉体としての酸化チタン粉体に、前記別物質としての窒素元素を複合化して、光触媒として機能する窒素含有酸化チタン粉体を製造することができる。

更に、本発明に係る粉体処理方法により複合粉体としての窒素含有酸化チタン粉体を製造する場合には、前記機械的処理及び前記励起処理において、前記酸化チタン粉体に窒素ガス又は窒素化合物を供給して、前記酸化チタン粉体に窒素元素を接触させることで、前記複合粉体としての窒素含有酸化チタン粉体を製造することができる。

即ち、被処理粉体に対して、窒素ガスやアンモニアガス等の窒素化合物ガスを供給する、又は、尿素粉体等の窒素化合物粉体を混合することで、被処理粉体に窒素元素を接触させることができる。そして、この状態で摩碎処理等の機械的処理及び励起処理を行うことで、被処理粉体に窒素元素の反応種（ラジカル）が形成され、被処理粉体に良好に窒素元素を複合化して窒素含有酸化チタン粉体を製

造することができる。

本発明に係る粉体処理方法の更なる特徴構成は、前記複合粉体を再結晶温度以上臨界温度以下の範囲内に加熱して室温に戻す熱処理を行う点にある。

- 尚、再結晶温度とは、被処理粉体の再結晶を起こす温度であり、臨界温度とは、  
5 被処理粉体の液相と気相の臨界点での温度である。

即ち、上記粉体処理方法の特徴構成によれば、上記機械的処理及び上記励起処理を行うことにより生じた複合粉体表面における結晶の歪を、上記熱処理を行うことにより取り除いて、複合粉体表面の結晶性を高めることができ、被処理粉体と別物質との複合化状態を安定したものとすることができる。

- 10 上述した目的を達成するための本発明に係る粉体処理装置は、被処理粉体が堆積する堆積面と、前記堆積面に対向配置され凸状に湾曲する処理面とを備え、前記堆積面と前記処理面とを前記堆積面に沿って相対移動させる移動手段を備えた粉体処理装置であって、上記本発明に係る粉体処理方法を好適に実施可能に構成され、その特徴構成は、前記移動手段により前記堆積面に対して前記処理面を前記堆積面に沿って相対移動させることで、前記堆積面と前記処理面との間隙で前記被処理粉体に圧縮力とせん断力を付与して摩碎するように構成され、前記堆積面に対向配置された励起エネルギー供給部から、前記堆積面に堆積している前記被処理粉体に、励起エネルギーを付与可能な励起処理手段を備えた点にある。
- 15

- 即ち、上記粉体処理装置の特徴構成によれば、上記移動手段により堆積面に対して処理面を堆積面に沿って相対移動させることで、堆積面に堆積している被処理粉体を、処理面との間隙で、圧縮力とせん断力を付与して摩碎する摩碎処理を行うことができる。そして、上記摩碎処理を行うことで、被処理粉体の粒径を均等なものとしながら、被処理粉体が凝集することを抑制することができ、例えば、被処理粉体が別物質と接触する機会を高めることができる。

- 20 更に、被処理粉体に対して上記摩碎処理を施すことで、被処理粉体表面の不純物の付着が極めて少なく活性化した状態とすることができます、例えば、被処理粉体の表面に被処理粉体と接觸状態にある別物質の複合化を良好に受け入れができる新生面を継続して形成することができる。

更に、その別物質が被処理粉体に混合された固体の化合物粉体中のものであれ

ば、その固体化合物粉体を被処理粉体に押し当てて、別物質の被処理粉体への侵入を促進することができる。

そして、このように摩碎され別物質が複合化しやすい状態の被処理粉体に対して、上記励起処理手段により励起エネルギーを付与する所謂励起処理を行うことで、  
5 被処理粉体を構成する被処理粉体等を一層活性化させることができ、例えば、そ  
の被処理粉体と接触状態にある別物質を、被処理粉体に良好に複合化させて、効率良  
く複合粉体を製造することができる。

従って、上述したように、被処理粉体に対して、圧縮力とせん断力との機械的  
エネルギーに加えて、励起エネルギーを同時付与することが可能となる粉体処理装置  
10 を実現することができる。即ち、この粉体処理装置は、これまで説明してきた本  
発明に係る粉体処理方法を実施することができ、例えば、その粉体処理方法と同  
様に、被処理粉体にそれと接触状態にある別物質を効率良く複合化させ  
15 ることができる。

本発明に係る粉体処理装置の更なる特徴構成は、前記励起処理手段が、前記励  
20 起エネルギーとして放電プラズマを前記被処理粉体に照射するように構成されてい  
る点にある。

即ち、上記粉体処理装置の特徴構成によれば、上記励起処理手段により、励起  
エネルギー源であるグロー放電、アーク放電、スパーク放電による放電プラズマを照  
射して被処理粉体を励起することで、簡単且つ効率良く被処理粉体を励起させ  
25 ことができ、例えば、被処理粉体に対して別物質をスペッタリングして複合化さ  
せることができる。

更に、本発明に係る粉体処理装置において、前記励起処理手段が励起エネルギー  
として放電プラズマを被処理粉体に照射する場合において、前記放電プラズマの  
前記被処理粉体に対する照射範囲を制限するための磁界を形成する磁界形成手段  
25 を備えることで、被処理粉体における放電プラズマの照射範囲を局所的なものに  
制限することができ、比較的小さいエネルギーでも、効率良く被処理粉体を励起さ  
せることができる。よって、この粉体処理装置により、例えば、被処理粉体に接  
触する別物質を効率良く被処理粉体に複合化させることができる。

本発明に係る粉体処理装置の更なる特徴構成は、前記励起処理手段が、前記励

起エネルギー供給部として前記処理面から前記励起エネルギーを前記被処理粉体に照射するように構成されている点にある。

即ち、上記粉体処理装置の特徴構成によれば、処理部材に形成された処理面を、上記励起エネルギー供給部として利用して、堆積面と処理面との間隙で摩碎されて 5 いる被処理粉体に対して、その摩碎処理と同時に、励起エネルギーを供給する励起処理を施すことが可能となる。よって、上記励起エネルギー供給部として処理部材とは別の部材を設置する必要がなく、装置構成を簡素化することができる。更に、上記特徴構成により、堆積面と処理面との間隙で被処理粉体中の被処理粉体を摩碎した瞬間に励起エネルギーを付与することができる。よって、摩碎により被処理 10 粉体表面に新生面が形成された瞬間に、別物質を被処理粉体表面に良好に複合化することができる。

本発明に係る粉体処理装置の更なる特徴構成は、前記堆積面が、有底円筒状の容器部材の内面に形成され、前記処理面が、前記容器部材の円筒軸心側から前記堆積面側に突出する処理部材の先端部に形成され、前記移動手段が、前記容器部 15 材を、円筒軸心を中心に回転駆動させる手段である点にある。

即ち、上記移動手段により、その容器部材を、円筒軸心を中心に回転させることで、容器部材内面の堆積面と、処理部材先端部の処理面とを、堆積面に沿って相対移動させることができる。

更に、本発明に係る粉体処理装置は、前記容器部材及び前記処理部材を密閉状 20 態で収容するケーシング内部を大気圧未満に減圧可能な減圧手段を備えることもできる。即ち、上記減圧手段を設けることで、上記容器部材及び処理部材を密閉状態の上記ケーシング内に配置して、そのケーシング内を減圧可能に構成することができ、大気圧未満に減圧されたケーシング内で効率良く放電プラズマ等の励起エネルギーを付与することができる。

25 また、ケーシング内を減圧せずに大気圧とし、励起処理手段により、グロー放電プラズマ等の励起エネルギーを付与しても構わない。

更に、本発明に係る粉体処理装置は、前記容器部材及び前記処理部材を密閉状態で収容するケーシング内部に所定の処理ガスを供給可能なガス供給手段を備えることもできる。即ち、上記ガス供給手段を設けることで、上記容器部材の被処

理粉体の処理に必要な処理ガスを、上記ケーシング内に供給して、被処理粉体に接觸させることができる。

また、上記励起エネルギーとして放電プラズマを、容器部材内に供給して摩碎処理されている被処理粉体に照射し、被処理粉体に別物質を複合化する場合において、高エネルギーイオン源となるアルゴンガスやヘリウムガス、及び、上記別物質としての窒素等を含む窒素ガス又はアンモニアガス等の化合物ガス、等の所定の処理ガスを容器内に供給することで、その処理ガスを良好に被処理粉体に接觸させ、複合化することができる。  
5

本発明に係る粉体処理装置の更なる特徴構成は、これまで説明してきた粉体処理装置の特徴構成に加えて、前記堆積面又は前記処理面を、前記堆積面に交差する方向に沿って振動させる振動手段を備えた点にある。  
10

また、上述した目的を達成するための本発明に係る粉体処理装置は、被処理粉体が堆積する堆積面と、前記堆積面に対向配置され凸状に湾曲する処理面とを備え、  
15

前記堆積面と前記処理面とを前記堆積面に沿って相対移動させる移動手段を備えた粉体処理装置であって、その特徴構成は、前記堆積面又は前記処理面を、前記堆積面に交差する方向に沿って振動させる振動手段を備えた点にある。  
20

また、上述した目的を達成するための本発明に係る多孔質造粒物の製造方法は、被処理粉体が凝集してなり複数の気孔を有する多孔質造粒物の製造方法であって、その特徴構成は、粉体が堆積する堆積面と前記堆積面に対向配置され凸状に湾曲する処理面とを、前記堆積面に沿って相対移動させながら、前記堆積面又は前記処理面を、前記堆積面に交差する方向に沿って振動させて、前記堆積面と前記処理面との間隙で被処理粉体に圧縮力を付与して前記多孔質造粒物を製造する点にある。  
25

即ち、本発明者らは、上述したように、移動手段により被処理粉体に摩碎処理を施すことができる粉体処理装置において、被処理粉体に付与されるせん断力が圧縮力に対して大きすぎる場合には、被処理粉体の表面を活性面にできるものの、被処理粉体同士を良好に押し付けることができずに、被処理粉体の凝集が良好に進行しないことを見出した。一方、本発明者らは、被処理粉体に付与されるせん

断力を低下させて、被処理粉体に付与される圧縮力のせん断力に対する割合を増加させた場合には、被処理粉体に適当なせん断力を付与して被処理粉体の表面を適当な活性面にしながら、被処理粉体同士を強く押し付けて、良好に凝集させることができたことを見出した。そして、本発明者らは、これらの知見により本発明を完成するに到った。

即ち、上記粉体処理装置及び上記多孔質造粒物の製造方法の第1特徴構成によれば、上記移動手段に加えて、堆積面又は処理面を堆積面に交差する方向に沿って振動させて被処理粉体に付与されるせん断力を低下させることができる振動手段を設けることで、被処理粉体を良好に凝集させて、多孔質造粒物を効率良く製造することができる。

詳しくは、堆積面に対向配置された処理面を凸状に湾曲させることで、堆積面と処理面との間には、被処理粉体の通過方向において幅を縮小する間隙が形成される。そして、上記移動手段を働かせて、堆積面に堆積している被処理粉体を、上記間隙に通過させることで、その被処理粉体に圧縮力とせん断力を付与することができる。

更に、上記振動手段を働かせて、堆積面又は処理面を振動させることで、被処理粉体と堆積面又は処理面との間で発生する摩擦力を低下させることができる。即ち、上記振動手段を働かせることにより、被処理粉体に対して付与されるせん断力を低下させ、更には、その振動により被処理粉体に対して衝撃力を加えて、被処理粉体に付与される圧縮力を増加させることができる。よって、上記特徴構成により、被処理粉体に適当なせん断力を付与して、被処理粉体の表面を適当な活性面にしながら、被処理粉体同士を強く押し付けて、良好に凝集させ、多孔質造粒物を効率良く製造することができる。

本発明に係る粉体処理装置の更なる特徴構成は、前記移動手段による前記処理面の相対移動方向における前記処理面の後方に配置され、且つ、前記処理面より前記堆積面側に突出した破碎部を備えた点にある。

また、本発明に係る多孔質造粒物の製造方法の更なる特徴構成は、前記処理面の相対移動方向における前記処理面の後方で、前記処理面より前記堆積面側に突出した破碎部を、前記処理面と共に前記堆積面に対して相対移動させて、前記堆

積面に堆積している前記多孔質造粒物を破碎する点にある。

即ち、上記粉体処理装置及び上記多孔質造粒物の製造方法の特徴構成によれば、上記移動手段により前記処理面の後方で前記処理面と共に前記堆積面に対して相対移動すると共に前記処理面より前記堆積面側に突出した破碎部を設けることで、  
5 堆積面に堆積している多孔質造粒物に破碎部を衝突させて、多孔質造粒物を適度な大きさに破碎することができる。更に、上記破碎部により、多孔質造粒物を堆積面から剥がし落として容易に取り出すことができる。更に、このように多孔質造粒物を適度な大きさに破碎することで、多孔質造粒物の可搬性を向上させ、更に、適度に破碎された複数の多孔質造粒物を金型などに充填してあらゆる形状に  
10 成形することができる。

また、これまで説明した粉体処理装置において、更に、前記振動手段が、前記堆積面又は前記処理面の振動周波数を調整することにより、前記堆積面と前記処理面との間隙で被処理粉体に付与するせん断力の大きさを調整可能に構成されていることが好ましい。即ち、上記振動周波数を調整することにより、被処理粉体  
15 と堆積面又は処理面との間で発生する摩擦力を変化させて、被処理粉体に付与されるせん断力の圧縮力に対する割合を好適なものに調整することができる。

また、これまで説明してきた粉体処理装置において、前記堆積面を、有底円筒状の容器部材の内面に形成し、前記処理面を、前記容器部材の円筒軸心側から前記堆積面側に突出する処理部材の先端部に形成し、前記移動手段を、前記容器部材を、円筒軸心を中心に回転駆動させる手段とし、前記振動手段を、前記処理部材を前記堆積面に交差する方向に振動駆動させる手段とすることができる。  
20

即ち、上記移動手段により、その容器部材を、円筒軸心を中心に回転させるごとで、容器部材内面の堆積面と、処理部材先端部の処理面とを、堆積面に沿って相対移動させることができる。

25 そして、上記振動手段により、その処理部材を突出方向に沿って振動させるごとで、処理部材先端部の処理面を、堆積面に交差する方向に沿って振動させることができる。

更に、移動手段の回転駆動対象を容器部材とし、振動手段の振動駆動対象を上記回転駆動対象とは別の処理部材とすることで、各手段を簡素化することができ

る。

また、これまで説明してきた多孔質造粒物の製造方法において、前記多孔質造粒物を構成する被処理粉体の平均粒子径は  $1 \mu m$  以下であり、前記多孔質造粒物に形成された気孔の平均径が  $100 nm$  以下であるように、堆積面と処理面との間隙の幅、堆積面と処理面との相対移動速度及び振動周波数、被処理粉体の種類等の各種条件を設定することにより、上記気孔により空気分子の運動を良好に規制することができ、更には、その気孔への空気分子の進入を規制して、超低熱伝導率や超高吸音性などを達成可能な多孔質造粒物を製造することができる。

## 10 図面の簡単な説明

図 1 は、粉体処理装置の第 1 実施形態を示す概略立面図、

図 2 は、図 1 に示す粉体処理装置の概略平面図、

図 3 は、粉体処理装置の第 2 実施形態を示す概略立面図、

図 4 は、図 3 に示す粉体処理装置の概略平面図、

15 図 5 (a) は、被処理粉体の状態を示す図、図 5 (b) は多孔質造粒物の状態を示す図、及び、図 5 (c) は多孔質造粒物粉体の状態を示す図、である。

## 発明を実施するための最良の形態

以下に本発明の実施の形態を図面に基づいて説明する。

### 20 [粉体処理方法の実施形態]

本発明に係る粉体処理方法は、酸化チタン等の被処理粉体の表面を充分に活性化し、更に、その被処理粉体に、窒素元素等の別物質を、簡単且つ高効率に複合化させて、窒素含有酸化チタン等の複合粉体を製造するものである。

詳述すると、本粉体処理方法は、被処理粉体に対して、圧縮力、せん断力、衝撃力の少なくとも 1 つの機械的な力を付与する機械的処理を行うことで、被処理粉体の表面に少なくとも歪を発生させて、被処理粉体表面を活性化させるように構成されている。更に、本粉体処理方法は、上記機械的処理を行って被処理粉体を攪拌することにより被処理粉体同士の凝集を抑制しながら、放電プラズマ、又は電磁波（例えば、紫外光、レーザ、マイクロ波）等の励起エネルギーを被処理粉

体に付与する励起処理を行うように構成されている。そして、このように機械的処理を行いながら励起処理が行われることにより、被処理粉体は、他の別物質が複合化しやすい状態にまで充分に活性化されることになる。

そして、本粉体処理方法は、機械的処理及び励起処理を行いながら、被処理粉体に別物質を接触させることで、被処理粉体に良好に別物質を複合化して複合粉体を製造することができる。  
5

更に、本粉体処理方法は、上記機械的処理として、被処理粉体に対して圧縮力とせん断力との両方を付与して被処理粉体を摩碎する摩碎処理を行うように構成されている。そして、このように摩碎処理を行うことにより、被処理粉体の粒径  
10 を均等なものとしながら、被処理粉体の表面に新生面を形成することができる。よって、この摩碎処理を行うことにより、被処理粉体表面を、一層活性化させて別物質が一層複合化しやすい状態とすることができます。

また、酸化チタン粉体に窒素元素を複合化して窒素含有酸化チタン粉体を製造する場合には、本粉体処理方法は、上記摩碎処理等の機械的処理及び上記励起処理において、酸化チタン粉体に、窒素ガスやアンモニアガス等の窒素化合物ガスを供給する、又は、尿素粉体等の窒素化合物粉体を混合するように構成される。このように構成することで、酸化チタン粉体に窒素元素を接触させることができ、酸化チタン粉体に窒素元素を複合化して窒素含有酸化チタン粉体を製造することができる。  
15

また、本粉体処理方法は、適宜、摩碎処理等の機械的処理及び励起処理を、減圧雰囲気下で行う、又は、かかる処理に用いられる処理ガス雰囲気下で行うように構成することができる。  
20

更に、本粉体処理方法において、被処理粉体に別物質を複合化して製造した複合粉体に対して、再結晶温度以上臨界温度以下の範囲内に加熱して室温に戻す熱処理を施すことが望ましい。即ち、上記機械的処理及び上記励起処理を施すことにより生じた複合粉体表面における結晶の歪を、上記熱処理を施すことにより取り除いて、複合粉体表面の結晶性を高めることができ、被処理粉体と別物質との複合化状態を安定したものとすることができる。  
25

また、本粉体処理方法において、酸化チタン粉体に窒素を複合化させて、複合

粉体としての窒素含有酸化チタン粉体を製造する場合には、その窒素含有酸化チタン粉体に、上記熱処理を施すことにより、酸化チタン粉体と窒素との複合化状態を安定したものとして、良好な光触媒性能を発揮させることができる。また、窒素含有酸化チタン粉体に対しては、10分間～3時間程度の間、300～60

5 0°C程度に加熱して、室温に戻すように上記熱処理を施すことが望ましく、酸化チタン粉体と窒素との複合化状態をより安定したものとすることができる。

また、本粉体処理方法の実施形態において、励起処理と同時に行う機械的処理として、被処理粉体に圧縮力とせん断力とを付与して摩碎する摩碎処理を行う例を中心説明したが、別に、機械的処理として、圧縮力、せん断力、衝撃力等の複数種の機械的な力から選択される少なくとも1つを、被処理粉体に付与することで、被処理粉体の表面又は表面近傍に歪を与えて転移又は欠陥等により活性化する処理を行うことで、本発明の効果を奏すことができる。

また、かかる機械的処理としては、例えば、回転ドラム型混合機、衝撃式粉碎機、ボールミル、ジェットミル、ローラミル等による攪拌又は粉碎処理などを挙げることができる。また、このような機械的処理を行う装置において、上記励起エネルギー供給部は、被処理粉体が通過する間隙を形成する壁や、被処理粉体を機械的処理するための軸や、新たに設けた電極端子等を利用して、構成することができる。

#### 〔粉体処理装置の第1実施形態〕

次に、上記粉体処理方法を好適に実行可能な本発明に係る粉体処理装置の第1実施形態について、図1及び図2に基づいて説明する。

図1及び図2に示す粉体処理装置には、主に、基台1に設置された略円筒形状のケーシング2と、このケーシング2の内部に配置され筒軸心を中心に回転自在な有底略円筒状の容器部材3と、容器部材3の内部に配置されケーシング2に固定されたプレスヘッド5（処理部材の一例）とが設けられている。また、プレスヘッド5は、容器部材3の円筒軸心側から、容器部材3の内面である堆積面3a側に突出し、そして、プレスヘッド5の先端部には、堆積面3aに対向して凸状に湾曲した処理面5aが形成されている。

容器部材3は、ケーシング2に軸受けされた軸体15に固定され、その軸体1

5 の軸心周りに回転自在に構成されている。更に、軸体 15 を回転駆動するモータ、プーリー、及び、ベルト等からなる回転駆動手段 16 が設けられている。

回転駆動手段 16 は、軸体 15 を回転駆動することで、容器部材 3 を、ケーシング 2 に固定されたプレスヘッド 5 に対して相対回転させて、容器部材 3 の内面 5 である堆積面 3a と、プレスヘッド 5 の処理面 5a とを、堆積面 3a に沿って相対移動させる移動手段として機能する。

移動手段として機能する回転駆動手段 16 により、堆積面 3a と処理面 5a とを堆積面 3a に沿って相対移動させることで、堆積面 3a と処理面 5a との間隙 7 にある被処理粉体 50 に対して、圧縮力とせん断力とを付して、言い換えれば、  
10 被処理粉体 50 を処理面 5a により堆積面 3a 側に押し付けながら擦りつけて、被処理粉体 50 の表面又はその近傍に歪を発生させる又は新生面を形成する摩碎処理を行うことができ、この摩碎処理により、被処理粉体 50 表面を活性化させ  
15 ことができる。尚、被処理粉体 50 としては、通常、粉体状の原料を用いるが、スラリー原料や懸濁液状の原料を用いることも可能である。

15 尚、堆積面 3a と処理面 5a との間隙 7 の幅は、プレスヘッド 5 を堆積面 5a に交差する方向に移動することで、例えば 0.5 mm 程度～10 mm 程度の範囲内で調整することができ、このように調整すれば、被処理粉体 50 に対して良好に摩碎処理を施すことができる。

また、処理面 5a と堆積面 3a との相対移動の速度は、回転駆動手段 16 による回転速度を調整することにより調整可能である。また、その回転速度を回転駆動手段 16 の回転能力以上としたい場合には、容器部材 3 の内径を拡大して、相対移動速度を稼ぐことができる。  
20

更に、粉体処理装置には、励起エネルギー供給部としてのプレスヘッド 5 の処理面 5a から、容器部材 3 の堆積面 3a に堆積している被処理粉体 50 に対して、  
25 励起エネルギーとしての放電プラズマを付与可能な励起処理手段 20 が設けられている。

詳しくは、励起処理手段 20 は、ケーシング 2 に対して絶縁状態とされたプレスヘッド 5 に接続された導線 22 と、ケーシング 2 に対して接続された導線 23 との間に、電源部 21 により電圧を交流印加するように構成されている。そして、

5 このように励起処理手段 20 を働かせて導線 22 と導線 23 との間に電圧を印加すると、導線 22 に対して導通状態である処理面 5a と、導線 23 に対してケーシング 2 を通じて導通状態である堆積面 3a と、の間隙 7 に、グロー放電又はアーチ放電により放電プラズマを発生させることができる。よって、この励起処理手段 20 を働かせると、堆積面 3a と処理面 5a との間隙 7 で摩碎処理がされている被処理粉体 50 には、励起処理手段 20 により発生された放電プラズマが照射されることになる。

10 従って、このような粉体処理装置により、被処理粉体 50 に対して、摩碎処理及び励起処理を同時に施すことができ、更に、この被処理粉体 50 に所定の別物質を接触させながらこれらの処理を施すことで、摩碎及び励起された被処理粉体 50 に別物質を極めて良好に複合化させて、効率良く、複合粉体を製造することができる。

15 更に、別物質が、尿素等のように、固体の化合物であれば、その化合物粉体を被処理粉体 50 と混合した状態で、容器部材 3 内に投入して処理することで、被処理粉体 50 に別物質を複合化して複合粉体を製造することができる。

また、図 2 に示すように、励起処理手段 20 により間隙 7 に発生される放電プラズマの被処理粉体 50 に対する照射範囲を、例えば局所的なものに制限するための磁界を形成する磁界形成手段として、プレスヘッド 5 に磁石 28 を配置しても構わない。

20 粉体処理装置には、効率良く放電プラズマを発生させるために、容器部材 3 及びプレスヘッド 5 を密閉状態で収容するケーシング 2 内部を大気圧未満に減圧可能な減圧手段としての減圧ポンプ 27 が設けられている。例えば、放電プラズマ中の電子の加速距離は圧力に依存することから、ケーシング 2 内の圧力を 50 Pa 以下とすることで、電子の加速距離が容器部材 3 のサイズを超える、容器部材 3 25 内全体を放電プラズマ場とすることができます、被処理粉体 50 の処理効率を向上することができる。

更に、粉体処理装置には、所定の処理ガスを圧縮した状態で貯留するガスボンベ 25 と、ガスボンベ 25 に貯留されているガスをケーシング 3 内部に供給する供給管 26 とからなるガス供給手段 24 が設けられている。

また、励起処理手段 20 が励起エネルギーとして放電プラズマを被処理粉体 50 に照射して、被処理粉体 50 に別物質を複合化する場合において、ガス供給手段 24 は、高エネルギーイオン源となるアルゴンガスやヘリウムガス、別物質を含むガス等のあらゆる処理ガスをケーシング 3 内に供給して、その処理ガスを良好 5 に被処理粉体 50 に接触させ、複合化させることができる。

プレスヘッド 5 によって圧縮力及びせん断力を付与された被処理粉体 50 は、主に容器部材 3 の周壁 8 に設けた孔部 9 を介して外方に排出され、周壁 8 の外周部に形成した羽根部材 10 によって再び容器部材 3 の内部に循環される。本構成により、処理面 5a と堆積面 3a との間隙 7 に挟まれた被処理粉体 50 を積極的に 10 流動・循環させ、堆積面 3a に対する被処理粉体 50 の付着量を少なくすることができます。

この粉体処理装置のごとく、孔部 9 を介して混合粉体 4 を循環させる構成の装置を用いることとすれば、被処理粉体 50 に作用させる圧縮力等を適宜加減する 15 ことができる。

例えば、孔部 9 の開口面積を広く設定しておけば、被処理粉体 50 は容器部材 3 の外部に容易に排出されるから、被処理粉体 50 に対する処理面 5a の作用時間が短くなり、被処理粉体 50 に作用する圧縮力が結果的に弱まることとなる。逆に、孔部 9 の開口面積を狭く設定しておけば、被処理粉体 50 に対する処理面 5a の作用時間が長くなり、圧縮力は強まることとなる。

20 このように、本実施形態の粉体処理装置を用いる場合には、被処理粉体 50 に対して摩碎処理及び励起処理を同時に施しながら、圧縮力等を任意に変更して最適な粉体処理条件を製造することが可能であり、優れた品質の複合粉体を製造することができる。

粉体処理装置を用いて、被処理粉体 50 としての酸化チタン粉体に別物質として 25 の窒素元素を接触した状態で、摩碎処理及び励起処理を同時に行って、窒素を酸化チタン粉体に複合化させ、窒素含有酸化チタン粉体を製造する場合の実施例について、以下に説明する。

#### [実施例 1]

本実施例 1においては、ガス供給手段 24 によりケーシング 2 内に窒素ガスを

供給してケーシング 2 内に窒素ガスが充填されている状態で、30 分程度の間、酸化チタン粉末を処理面 5 a と堆積面 3 aとの間隙 7において摩碎しながら、グロー放電プラズマを照射することで、窒素ガス中の窒素元素を酸化チタン粉末に複合化させた。この方法により、黄色の窒素含有酸化チタン粉体を製造することができた。

#### [実施例 2]

本実施例 2においては、酸化チタン粉末と尿素粉末とを混合した混合粉末を容器部材 3 内に投入し、ガス供給手段 2 4によりケーシング 2 内に高エネルギーイオン源となるアルゴンガスやヘリウムガスを供給してケーシング 2 内にアルゴンガスやヘリウムガスが充填されている状態で、5 分から 30 分程度の間、その混合粉末を処理面 5 a と堆積面 3 aとの間隙 7において摩碎しながら、放電プラズマを照射することで、尿素中の窒素を酸化チタン粉末に複合化させた。この方法により、黄色の窒素含有酸化チタン粉体を製造することができた。

上述した実施例 1 及び 2において、間隙 7 の幅を 1, 3, 5 mm とし、減圧手段により減圧されたケーシング 2 内の圧力を 10 Pa ~ 1 kPa の範囲内に設定し、電源部 2 1 により印加する電圧を 500 V ~ 5000 V の範囲内に設定し、容器の回転速度即ち処理面 5 a の堆積面 3 a に対する相対移動速度を 1 m / s ~ 30 m / s の範囲内に設定したときに、良好に窒素含有酸化チタン粉体を製造することができた。

また、上述した実施例 1, 2 の方法で製造した窒素含有酸化チタン粉体は、蛍光灯下においてメチレンブルーの分解性を示すことから、光触媒の機能を定性的に確認できた。

上述した実施例 1 及び 2において、間隙 7 に発生させる放電プラズマの種類はグロー放電であるが、更に電圧を増すと、溶接で使われるアーク放電になり、このようにアーク放電によっても、酸化チタン粉体等の被処理粉体に窒素元素等の別物質を複合化させることが可能であると考えられる。

#### [実施例 3]

本実施例 3においては、上記実施例 2 の方法で製造した窒素含有酸化チタン粉体に対して、500 °C に加熱した状態を 30 分間維持した後室温に戻す熱処理を

施した。本実施例 3 の方法で製造した熱処理後の窒素含有酸化チタン粉体は、実施例 2 の方法で製造した熱処理前の窒素含有酸化チタン粉体と比較して、濃い黄色を示していることから、酸化チタン粉体に対する窒素の複合化状態がより安定していると考えられる。

5 また、原料の酸化チタン粉体と、実施例 2 の方法で製造した熱処理前の窒素含有酸化チタン粉体と、実施例 3 の方法で製造した熱処理後の窒素含有酸化チタン粉体との、蛍光灯下におけるメチレンブルーの分解に要した分解時間を計測した。

結果、酸化チタン粉体の分解時間が 48 時間であったのに対して、実施例 2 の方法で製造した熱処理前の窒素含有酸化チタン粉体の分解時間が 24 時間であり、  
10 更に、実施例 3 の方法で製造した熱処理後の窒素含有酸化チタン粉体の分解時間が 12 時間であった。

このことから、実施例 3 の方法で製造した熱処理後の窒素含有酸化チタン粉体は、酸化チタン粉体、更には、熱処理前の窒素含有酸化チタン粉体と比較して、非常に高い光触媒の機能を発揮することが確認できた。

15 上述した粉体処理方法の実施形態及び粉体処理装置の第 1 実施形態では、酸化チタン粉体の表面に、窒素元素を複合化させて、窒素含有酸化チタンを製造する構成を中心に説明したが、例えば、金属粉体とセラミックス粉体との一方を被処理粉体とし他方を別物質として金属とセラミックスとを複合化させる、又は、被処理粉体としてのカーボンナノチューブに別物質としてのカーボンとは別の元素  
20 を複合化させるなどのように、本発明に係る粉体処理方法及び粉体処理装置により、あらゆる複合粉体を製造可能である。

また、炭素、アルミニウム、ケイ素などからなる被処理粉体に窒素を複合化して、窒化炭素、窒化アルミニウム、窒化ケイ素の相を含む窒素含有粉体を製造することもできる。また、このような窒素含有粉体は、高い硬度を有するために加工用の研磨剤等の応用が可能である。また、複合粉体の表面に窒化アルミニウム及び窒化ケイ素の相が形成されていることで、熱伝導率及び耐食性が向上される。  
25

上述した粉体処理装置の第 1 実施形態において、堆積面 3a 又は処理面 5a を、堆積面 3a に交差する方向に沿って振動させる振動手段を備えても構わない。また、被処理粉体 4 に圧縮力とせん断力を付与して摩碎する摩碎処理において、

上記振動手段を働かせることにより、複合粉体等とした被処理粉体4を良好に凝集させて、多孔質造粒物を効率良く製造することができる。即ち、上記励起処理手段20により、被処理粉体50に励起エネルギーを付与して、被処理粉体50を活性化な状態に励起して、被処理粉体50表面を有機付着物等が殆ど付着せず、  
5 互いに凝集しやすい状態としながら、その活性化された被処理粉体50を、上記振動手段により振動される堆積面3aと処理面5aとの間隙を通過させることで、被処理粉体50同士の凝集を促進させて、多孔質造粒物を効率良く製造することができる。尚、この振動手段についての詳細構造については、以下の粉体処理装置の第2実施形態において説明する。

10 [粉体処理装置の第2実施形態]

次に、本発明に係る粉体処理装置の第2実施形態について、図3及び図4に基づいて説明する。

尚、上述した粉体処理装置の第1実施形態と同様の構成については、説明を割愛する。

15 図3及び図4に示す粉体処理装置において、処理面5aを先端部に形成してあるプレスヘッド5は、電磁式振動アクチュエータ40の振動子41に固定されており、更に、この電磁式振動アクチュエータ40の固定子42は、容器部材3の軸心付近に配置された支持部6に固定されている。また、この電磁式振動アクチュエータ40は、振動子41を、固定子42に対して、堆積面5aに交差する方向、好適には、堆積面5aと垂直方向（即ち、容器部材3の筒径方向）に沿って振動させるように構成配置されている。  
20

即ち、上記電磁式振動アクチュエータ40は、上記プレスヘッド5を堆積面5aに交差する方向に振動させることにより、処理面5aを、堆積面3aに対して、堆積面3aに交差する方向に沿って振動させる振動手段として機能する。

25 上記振動手段として機能する電磁式振動アクチュエータ40により、処理面5aを堆積面3aに交差する方向に沿って振動させることで、堆積面3aに堆積している被処理粉体50と処理面5aとの間で発生する摩擦力が低下するので、被処理粉体50に対して付与されるせん断力を低下させることができる。

更に、上記電磁アクチュエータ40により、処理面5aを堆積面3aに交差す

る方向に沿って振動させることで、被処理粉体 50 に対して衝撃力を加えて、被処理粉体 50 に付与される圧縮力を増加させることができる。

また、上記電磁式振動アクチュエータ 40 は、振動子 41、即ち、処理面 5a の振動周波数を調整可能に構成されており、このように処理面 5a の振動周波数 5 を調整することで、被処理粉体 50 と処理面 5a との間で発生する摩擦力を変化させて、被処理粉体 50 に付与されるせん断力の圧縮力に対する割合を好適なものに調整することができる。

以上のように、回転駆動手段 16 と電磁式振動アクチュエータ 40 との両方を働かせながら被処理粉体 50 を処理することで、堆積面 3a と処理面 5a との間隙 7 にある被処理粉体 50 に対して、比較的小さいせん断力により被処理粉体 50 の表面を適度に活性面にしながら、非常に大きな圧縮力を付して、被処理粉体 50 同士を強く押し付けて、被処理粉体 50 を凝集させて、図 5 (a) 及び (b) に示すように、多くの気孔 51 を有する多孔質造粒物 55 を製造することができる。

更に、支持部 6において、プレスヘッド 5 に接続された電磁式振動アクチュエータ 40 が固定されている箇所と反対側には、処理面 5a よりも堆積面 3a 側に突出した破碎部 35a を有するスクレーパ 35 が設けられている。

即ち、スクレーパ 35 の破碎部 35a は、プレスヘッド 5 の処理面 5a と同様に、回転駆動手段 16 により堆積面 3a に対して相対移動し、更に、その相対移動方向において、処理面 5a の後方に位置して、処理面 5a により押し付けられて堆積面 3a に張り付いている多孔質造粒物 55 を、堆積面 3a から剥がし落とすように破碎して、図 5 (c) に示すように、可搬性に優れ、且つ、あらゆる形状に成形することができる適當な大きさの多孔質造粒物粉体 56 とすることができる。

また、処理面 5a により被処理粉体 50 に大きな圧縮力を付与して多孔質造粒物 55 を形成し、その多孔質造粒物 55 は堆積面 3a に貼り付く状態で堆積する。そして、破碎部 35a でその堆積面 3a に堆積している多孔質造粒物 55 を破碎して多孔質造粒物粉体 56 とする処理を、回転駆動手段 16 により容器部材 3 を回転させて繰り返し行うことで、夫々の多孔質造粒物粉体 56 の結合及び分離を

繰り返し行って、多孔質造粒物粉体56における被処理粉体50の配置を比較的安定したものとすることができ、多孔質造粒物55及びその粉体56に極めて小さい気孔51を多数形成させることができ。

破碎部35aは、堆積面3aに張り付いている多孔質造粒物55の堆積面3aに近接した位置に刃先を食い込ませるような刃形状に形成されている。  
5

尚、破碎部35aの形状は、堆積面3aに張り付いている多孔質造粒物55を破碎することができればいかなる形状でも構わないが、例えば、先端部を堆積面3aに摺接又は近接させた櫛形状に形成しても構わない。

粉体処理装置において、堆積面3aと処理面5aとの間隙7の幅、回転駆動手  
10 段16による堆積面3aと処理面5aとの相対移動速度、及び、電磁式振動アクチュエータ40による振動周波数、被処理粉体50の種類等の各種条件を適切なものに選定して、多孔質造粒物55を構成する被処理粉体50の平均粒子径を1μm以下、多孔質造粒物55を構成する気孔51の平均径を100nm以下、気孔51により空気分子の運動を良好に規制し、更には、その気孔51への空気分子の進入を規制して、超低熱伝導率や超吸音性を達成可能な多孔質造粒物55及びその粉体56を製造することができる。  
15

多孔質造粒物粉体56や被処理粉体50は、主に容器部材3の周壁8に設けた孔部9を介して外方に排出され、周壁8の外周部に形成した羽根部材10によって再び容器部材3の内部に循環される。

20 被処理粉体50としては、多孔質造粒物の用途によってあらゆる材料の粒子を利用することができますが、例えば、被処理粉体50として、酸化チタン、酸化アルミニウム、炭化シリコン、窒化シリコン、シリカ等の無機物粒子を利用することができる。

また、被処理粉体50として、シリカ等のように、熱伝導率が低いものを選定すれば、多孔質造粒物55及びその多孔質造粒物粉体56における固体伝熱を低減することができ、更なる低熱伝導率化を図ることができる。  
25

更に、被処理粉体50として、チタニア、炭化珪素等のように、赤外線透過率が低いものを選定すれば、多孔質造粒物55及び多孔質造粒物粉体56における輻射伝熱を低減することができ、更なる低熱伝導率化を図ることができる。また、

被処理粉体 50 にチタニアを併用することで、光触媒を有した多孔質構造造粒物を作製することができる。

更に、粉体処理装置には、上述した第 1 実施形態と同様に、容器部材 3 の堆積面 3a に対向配置された励起エネルギー供給部としてプレスヘッド 5 の処理面 5a 5 から、堆積面 3a に堆積している被処理粉体 50 に、励起エネルギーとしての放電プラズマを付与可能な励起処理手段 20 を設けても構わない。尚、励起処理手段 20 の詳細構成については、上述した第 1 実施形態と同様の構成であるため説明を割愛する。

そして、この励起処理手段 20 を働かせると、堆積面 3a と処理面 5a との間隙 7 で摩碎処理がされている被処理粉体 50 には、励起処理手段 20 により発生された放電プラズマが照射されることになり、被処理粉体 50 を活性な状態に励起することができ、一層被処理粉体 50 の凝集を促進させることができる。

#### 〔別実施形態〕

上述した粉体処理装置の第 1 及び第 2 実施形態において、励起処理手段 20 により放電プラズマを発生させる場合、特にアーク放電により放電プラズマを発生させる場合には、堆積面 3a 及び処理面 5a のエッティングが汚染源になることが考えられるので、堆積面 3a 及び処理面 5a を、被処理粉体と同じ材料等でコーティングすることが好ましい。

粉体処理装置の第 1 及び第 2 実施形態において、ケーシング 2 内を減圧するための減圧ポンプ 27 を減圧手段として設けたが、ケーシング 2 内の圧力が大気圧であっても、励起処理手段 20 によるグロー放電プラズマが可能であるため、例えば、酸化チタン粉体等の被処理粉体に窒素元素等の別物質を複合化させることや、被処理粉体 50 を活性な状態に励起して被処理粉体 50 の凝集を促進させることが可能であると考えられ、よって、減圧手段を省略しても構わない。

粉体処理装置の第 1 及び第 2 実施形態において、励起処理手段 20 は、処理面 5a と堆積面 3a との間隙 7 にグロー放電又はアーク放電により放電プラズマを発生させて、被処理粉体 50 を活性化させる構成としたが、ケーシング 2 内の圧力が大気圧である場合には、励起処理手段 20 により間隙 7 にスパーク放電することも可能であり、間隙 7 にある被処理粉体 50 にこのスパークが流れることに

より、ジュール熱が発生して活性化させると共に微細化させ、例えば、別物質の被処理粉体への複合化が可能となる。

5 粉体処理装置の第1及び第2実施形態において、ガス供給手段24を設けケーシング2内に処理ガスを供給したが、空気環境下で摩碎処理及び励起処理を行う場合に、ガス供給手段24を省略しても構わない。

10 粉体処理装置の第1及び第2実施形態において、励起処理により、摩碎処理等の機械的処理が行われている被処理粉体に励起エネルギーとして放電プラズマを照射して、被処理粉体を活性化させたが、別に、励起エネルギーとして、紫外光やマイクロ波等の電磁波を照射して、被処理粉体を活性化させても構わない。例えば、  
15 励起処理において、アルゴン等の放電プラズマを併用して紫外光を照射することで、被処理粉体の表面の吸着有機物を効率良く除去することができる。また、酸素含有雰囲気では紫外光の照射によりオゾンが発生するので、被処理粉体表面の吸着有機物を分解及び酸化により除去することができる。

20 また、電磁波を照射する場合には、被処理粉体の吸収波長に応じて電磁波の波長を選択する。また、励起エネルギーとして電磁波を照射する場合には、励起エネルギー供給部（例えば、処理面5a）表面に石英、ガラス又はアルミナなどの材質の表面を形成し、励起エネルギー供給部の内部からその表面を介して励起エネルギーを照射することができる。

25 上述した粉体処理装置の第1及び第2実施形態において、プレスヘッド5を1つだけ設けたが、別に複数のプレスヘッド5を並設して、処理時間の短縮を図っても構わない。

また、複数のプレスヘッド5を並設する場合には、夫々のプレスヘッド5の処理面5aと堆積面3との間隙7の幅を互いに異ならせることで、被処理粉体50に付与される圧縮力及びせん断力等を互いに異ならせても構わず、更に、その複数のプレスヘッド5のうち、例えば、最も間隙7の幅が狭いプレスヘッド5のみに、図1及び図2に示す励起処理手段20や図3及び図4に示す振動手段としての電磁式振動アクチュエータ40を設けても構わない。

また、被処理粉体50に励起エネルギーを付与する励起エネルギー供給部をプレスヘッド5の処理面5aとしたが、励起エネルギー供給部を、例えば図3及び図4に

示すスクレーパ 35 の破碎部 35a などの、プレスヘッド 5 とは別に設けても構わず、このように構成することで、被処理粉体の微細化促進更には均質性向上を図ることができる。

また、プレスヘッド 5 と処理面 5a との間隙 7 とは別に、被処理粉体 50 が通過する間隙が存在する場合には、その間隙を挟む壁を励起エネルギー供給部として利用することができる。

また、放電プラズマ等の励起エネルギーを安定且つ正確な位置に照射するために、処理面等の励起エネルギー供給部を、被処理粉体側に突出する突部を設けた所謂剣山形状としても構わない。

上述した実施形態において、回転駆動手段 16 により回転される軸体 15 の駆動力の一部を使用して発電して、励起処理手段 20 の電源として利用しても構わない。

上述した実施の形態において、回転駆動手段 16 は軸体 15 を介して容器部材 3 のみを回転駆動することで、堆積面 3a に対して処理面 5a を堆積面 3a に沿って相対移動させたが、別に、回転駆動手段 16 を、プレスヘッド 5 のみ、又は、容器部材 3 とプレスヘッド 5 を回転駆動して、堆積面 3a に対して処理面 5a を堆積面 3a に沿って相対移動させても構わない。

#### 産業上の利用可能性

本発明は、被処理粉体に被処理粉体に圧縮力とせん断力を付与して摩碎する摩碎処理等の機械的処理を施して処理する粉体処理方法及び粉体処理装置において、被処理粉体を充分に活性化させて、その被処理粉体に別物質を複合化して複合粉体を製造する、又は、その処理粉体を凝集させて複数の気孔を有する多孔質造粒物等を製造する技術全般に広く利用することができる。

## 請求の範囲

1. 被処理粉体に機械的な力を付与して活性化させる機械的処理を行う粉体処理方法であって、
  - 5 前記機械的処理を行いながら、前記被処理粉体に励起エネルギーを付与する励起処理を行う粉体処理方法。
  2. 前記機械的処理として、前記被処理粉体に圧縮力とせん断力を付与して摩碎する摩碎処理を行う請求項1に記載の粉体処理方法。
  3. 前記励起エネルギーとして放電プラズマを用いる請求項1又は2に記載の粉体処理方法。  
10
  4. 前記機械的処理及び前記励起処理において、前記被処理粉体に別物質を接触させることで、前記被処理粉体に前記別物質を複合化して複合粉体を製造する請求項1から3の何れか1項に記載の粉体処理方法。
  5. 前記被処理粉体が酸化チタン粉体であり、前記別物質が窒素元素である請求項4に記載の粉体処理方法。  
15
  6. 前記機械的処理及び前記励起処理において、前記酸化チタン粉体に、窒素ガス又は窒素化合物を供給して、前記酸化チタン粉体に窒素元素を接触させることで、前記複合粉体として窒素含有酸化チタン粉体を製造する請求項5に記載の粉体処理方法。  
20
  7. 前記複合粉体を再結晶温度以上臨界温度以下の範囲内に加熱して室温に戻す熱処理を行う請求項4から6の何れか1項に記載の粉体処理方法。
  8. 被処理粉体が堆積する堆積面と、前記堆積面に対向配置され凸状に湾曲する処理面とを備え、  
前記堆積面と前記処理面とを前記堆積面に沿って相対移動させる移動手段を備  
25 えた粉体処理装置であって、  
前記移動手段により前記堆積面に対して前記処理面を前記堆積面に沿って相対移動させることで、前記堆積面と前記処理面との間隙で前記被処理粉体に圧縮力とせん断力を付与して摩碎するように構成され、  
前記堆積面に対向配置された励起エネルギー供給部から、前記堆積面に堆積して

いる前記被処理粉体に、励起エネルギーを付与可能な励起処理手段を備えた粉体処理装置。

9. 前記励起処理手段が、前記励起エネルギーとして放電プラズマを前記被処理粉体に照射するように構成されている請求項 8 に記載の粉体処理装置。

5 10. 前記放電プラズマの前記被処理粉体に対する照射範囲を制限するための磁界を形成する磁界形成手段を備えた請求項 9 に記載の粉体処理装置。

11. 前記励起処理手段が、前記励起エネルギー供給部として前記処理面から前記励起エネルギーを前記被処理粉体に照射するように構成されている請求項 8 から 10 の何れか 1 項に記載の粉体処理装置。

10 12. 前記堆積面が、有底円筒状の容器部材の内面に形成され、

前記処理面が、前記容器部材の円筒軸心側から前記堆積面側に突出する処理部材の先端部に形成され、

前記移動手段が、前記容器部材を、円筒軸心を中心に回転駆動させる手段である請求項 8 から 11 の何れか 1 項に記載の粉体処理装置。

15 13. 前記容器部材及び前記処理部材を密閉状態で収容するケーシング内部を大気圧未満に減圧可能な減圧手段を備えた請求項 12 に記載の粉体処理装置。

14. 前記容器部材及び前記処理部材を密閉状態で収容するケーシング内部に所定の処理ガスを供給可能なガス供給手段を備えた請求項 12 又は 13 に記載の粉体処理装置。

20 15. 前記堆積面又は前記処理面を、前記堆積面に交差する方向に沿って振動させる振動手段を備えた請求項 8 から 14 の何れか 1 項に記載の粉体処理装置。

16. 被処理粉体が堆積する堆積面と、前記堆積面に対向配置され凸状に湾曲する処理面とを備え、

前記堆積面と前記処理面とを前記堆積面に沿って相対移動させる移動手段を備えた粉体処理装置であって、

前記堆積面又は前記処理面を、前記堆積面に交差する方向に沿って振動させる振動手段を備えた粉体処理装置。

17. 前記移動手段による前記処理面の相対移動方向における前記処理面の後方に配置され、且つ、前記処理面より前記堆積面側に突出した破碎部を備えた請

求項 1 5 又は 1 6 に記載の粉体処理装置。

1 8 . 前記振動手段が、前記堆積面又は前記処理面の振動周波数を調整することにより、前記堆積面と前記処理面との間隙で被処理粉体に付与するせん断力を大きさを調整可能に構成されている請求項 1 5 から 1 7 の何れか 1 項に記載の粉体処理装置。  
5

1 9 . 前記堆積面が、有底円筒状の容器部材の内面に形成され、

前記処理面が、前記容器部材の円筒軸心側から前記堆積面側に突出する処理部材の先端部に形成され、

前記移動手段が、前記容器部材を、円筒軸心を中心に回転駆動させる手段であり、  
10

前記振動手段が、前記処理部材を前記堆積面に交差する方向に振動駆動させる手段である請求項 1 5 から 1 8 の何れか 1 項に記載の粉体処理装置。

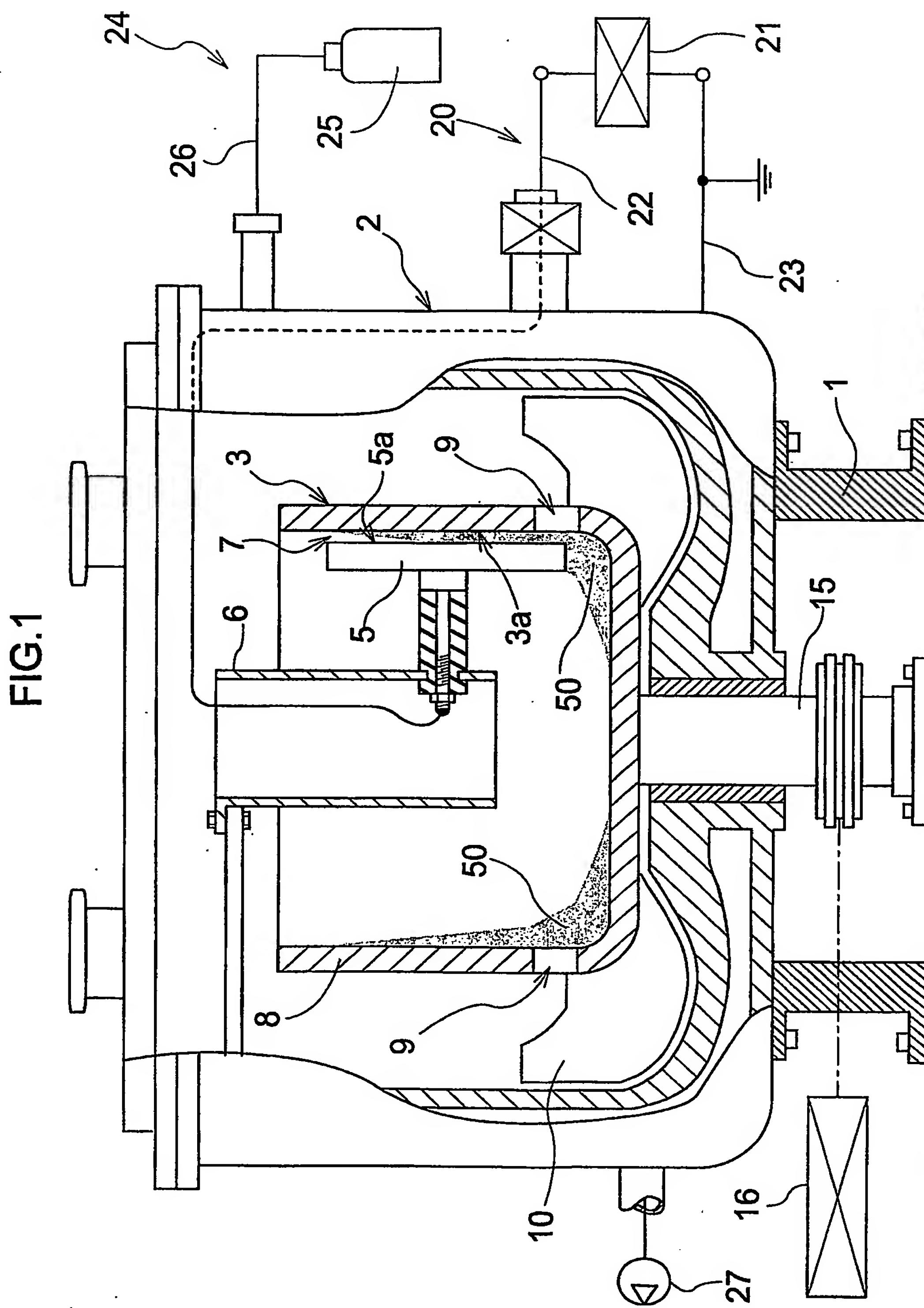
2 0 . 被処理粉体が凝集してなり複数の気孔を有する多孔質造粒物の製造方法であって、

15 被処理粉体が堆積する堆積面と前記堆積面に対向配置され凸状に湾曲する処理面とを、前記堆積面に沿って相対移動させながら、前記堆積面又は前記処理面を、前記堆積面に交差する方向に沿って振動させて、前記堆積面と前記処理面との間隙で被処理粉体に圧縮力を付与して前記多孔質造粒物を製造する多孔質造粒物の製造方法。

20 2 1 . 前記処理面の相対移動方向における前記処理面の後方で、前記処理面より前記堆積面側に突出した破碎部を、前記処理面と共に前記堆積面に対して相対移動させて、前記堆積面に堆積している前記多孔質造粒物を破碎する請求項 2 0 に記載の多孔質造粒物の製造方法。

2 2 . 前記多孔質造粒物を構成する被処理粉体の平均粒子径は  $1 \mu m$  以下であり、前記多孔質造粒物に形成された気孔の平均径が  $100 nm$  以下である請求項 2 0 又は 2 1 に記載の多孔質造粒物の製造方法。  
25

1/5



2/5

FIG.2

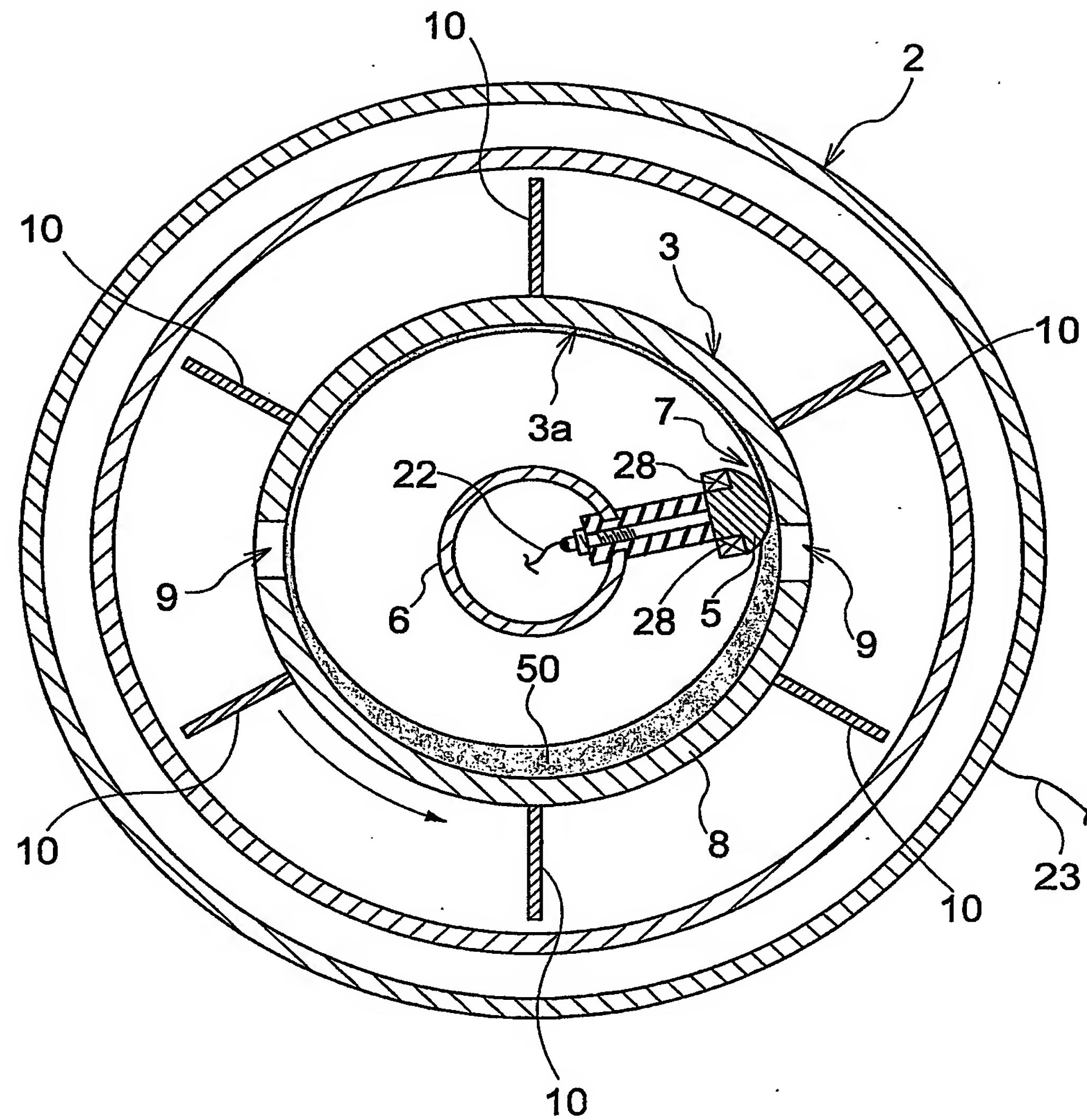
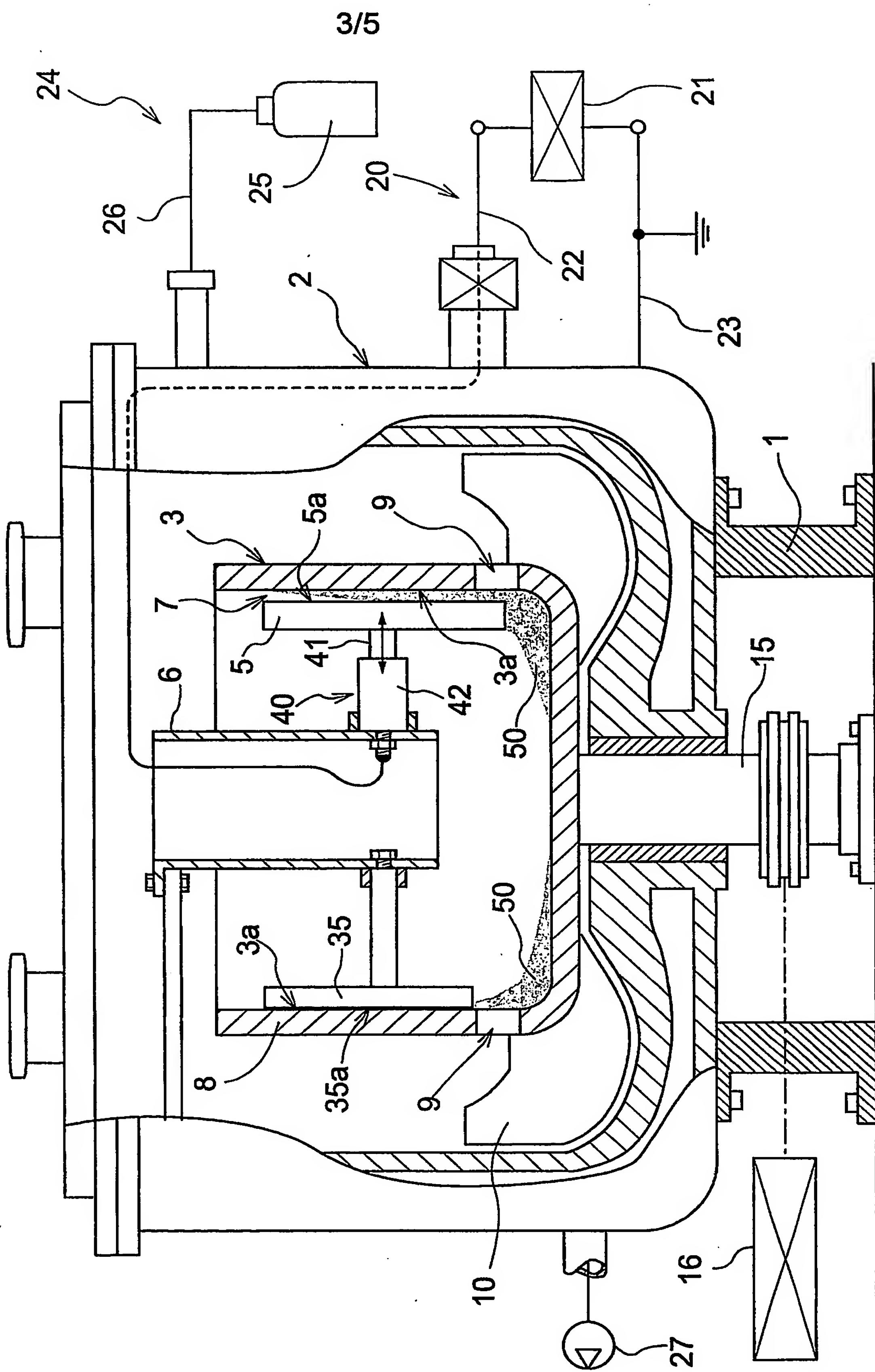


FIG.3



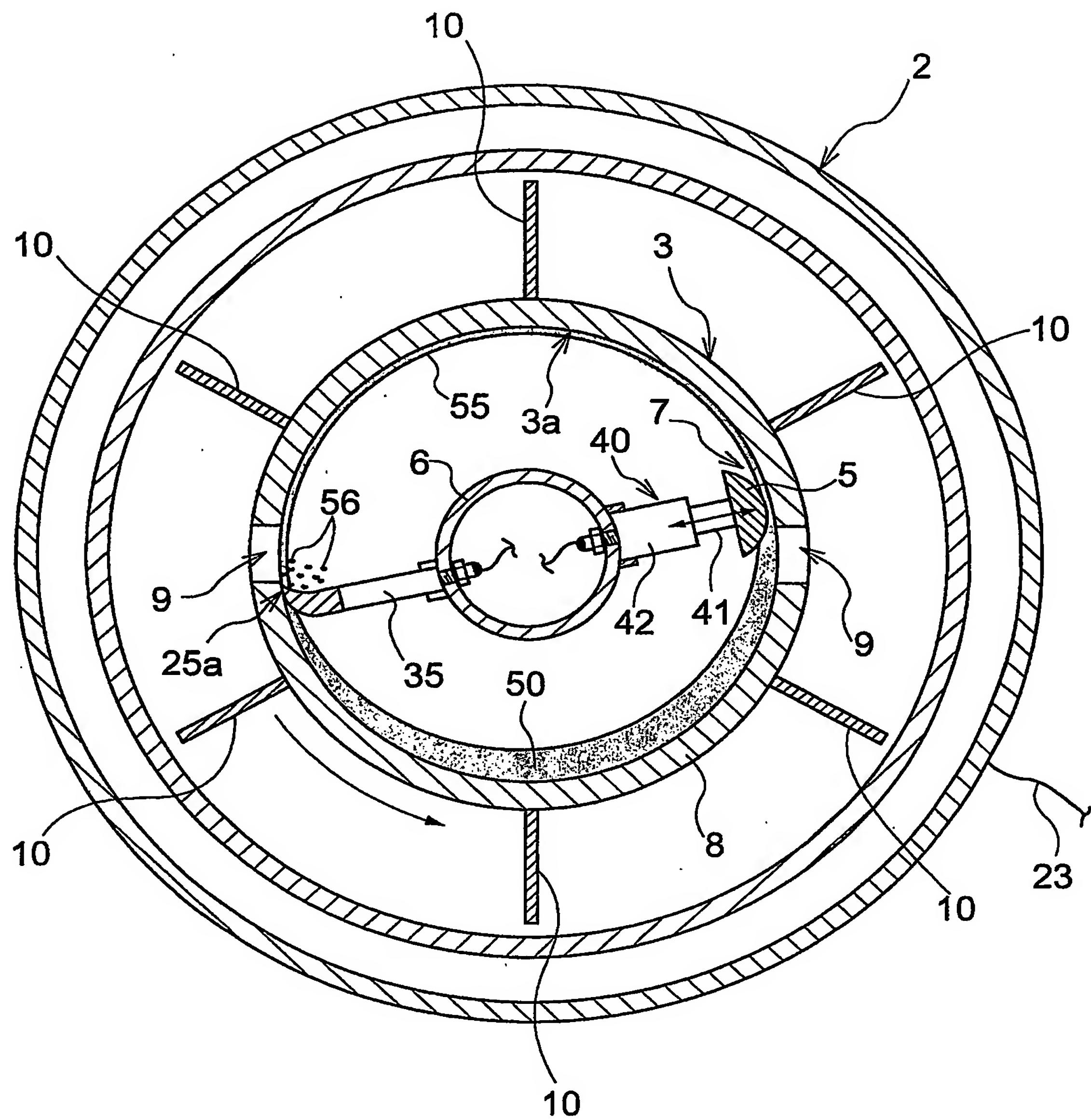
# BEST AVAILABLE COPY

WO 2004/112964

PCT/JP2003/014485

4/5

**FIG. 4**

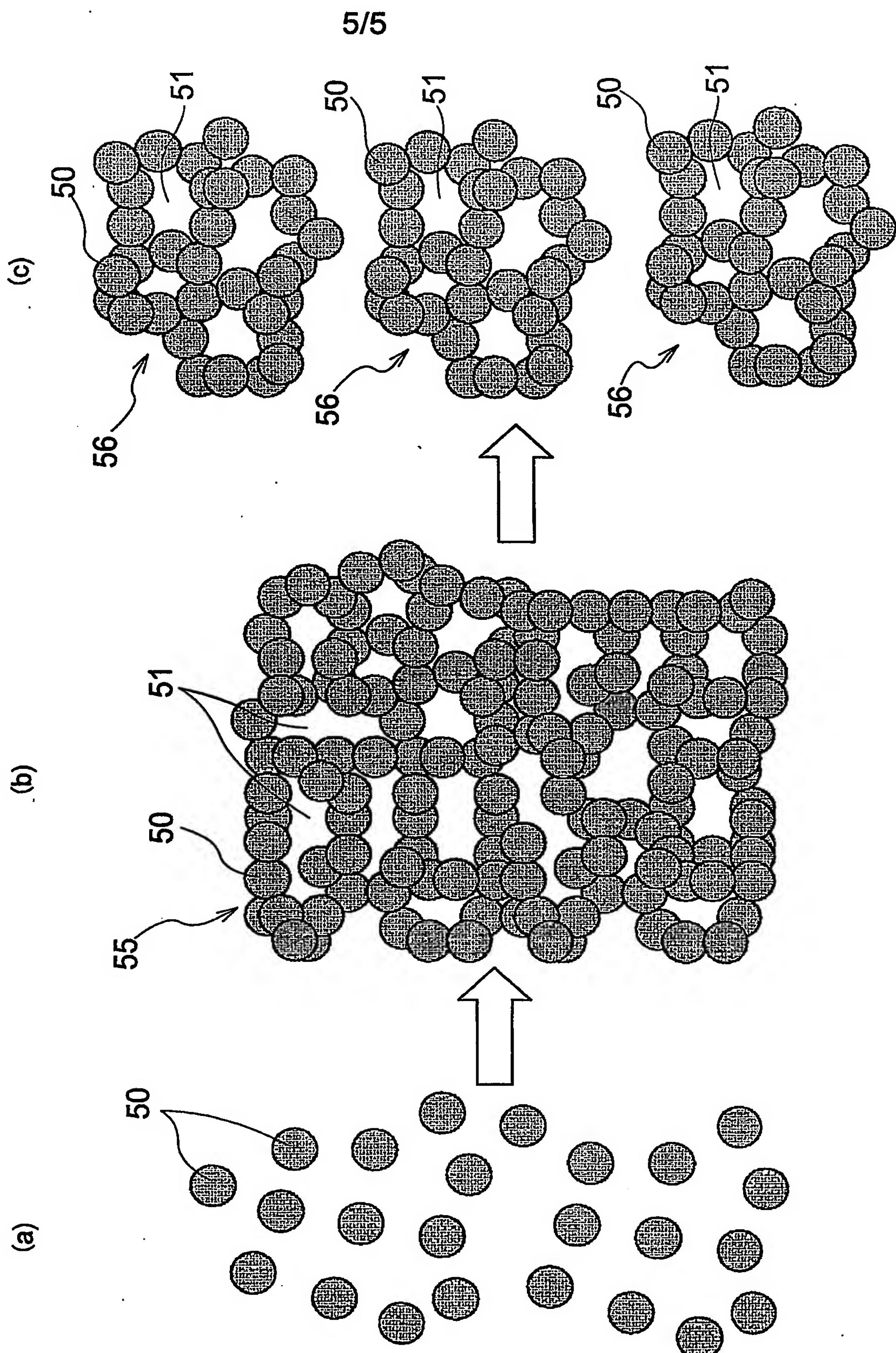


**BEST AVAILABLE COPY**

WO 2004/112964

PCT/JP2003/014485

**FIG.5**



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/14485

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> B02C19/18, 15/08, B01J2/12, 2/18

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> B02C19/18, 15/08, B01J2/00-2/18

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2004	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 63-283767 A (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corp.), 21 November, 1988 (21.11.88), Page 3, upper right column, lines 1 to 11 (Family: none).	1,2,4
A	JP 63-42728 A (Hosokawa Micron Corp.), 23 February, 1988 (23.02.88), Full text; all drawings & EP 241930 A2 & US 4789105 A1 & KR 9005175 B & CA 1279304 A	1-22
A	JP 5-317679 A (Hosokawa Micron Corp.), 03 December, 1993 (03.12.93), Full text; all drawings (Family: none)	1-22

Further documents are listed in the continuation of Box C.  See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T"	later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&"	document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means		
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		

Date of the actual completion of the international search  
17 February, 2004 (17.02.04)

Date of mailing of the international search report  
02 March, 2004 (02.03.04)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Faxsimile No.

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP03/14485

**C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 6-134274 A (Hosokawa Micron Corp.), 17 May, 1994 (17.05.94), Full text; all drawings (Family: none)	1-22
A	JP 3-188935 A (Hosokawa Micron Corp.), 16 August, 1991 (16.08.91), Full text; all drawings (Family: none)	1-22
A	JP 8-38917 A (Komatsu Ltd.), 13 February, 1996 (13.02.96), Full text; all drawings (Family: none)	1-22

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))  
 Int. C1' B02C 19/18, 15/08  
 B01J 2/12, 2/18

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))  
 Int. C1' B02C 19/18, 15/08  
 B01J 2/00-2/18

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2004年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2004年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2004年

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 63-283767 A (動力炉・核燃料開発事業団) 1988. 11. 21, 第3頁, 右上欄第1-11行 (ファミリーなし)	1, 2, 4
A	JP 63-42728 A (ホソカワミクロン株式会社) 1988. 02. 23, 全文, 全図 & EP 241930 A2 & US 4789105 A1 & KR 9005175 B & CA 1279304 A	1-22

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
- 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

## の日の後に公表された文献

- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

17. 02. 04

国際調査報告の発送日

02. 3. 2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

青木 良憲

3F 9624



電話番号 03-3581-1101 内線 3351

## C(続き) . 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	J P 5-317679 A (ホソカワミクロン株式会社) 1993. 12. 03, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-22
A	J P 6-134274 A (ホソカワミクロン株式会社) 1994. 05. 17, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-22
A	J P 3-188935 A (ホソカワミクロン株式会社) 1991. 08. 16, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-22
A	J P 8-38917 A (株式会社小松製作所) 1996. 02. 13, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-22